

## 明 細 書

## 蛍光体、蛍光体ペーストおよび真空紫外線励起発光素子

5

技術分野

本発明は蛍光体、蛍光体ペーストおよび真空紫外線励起発光素子に関する。

背景技術

10 蛍光体は、プラズマディスプレイパネル(PDP)や希ガスランプのような真空紫外線励起発光素子に不可欠なものであり、各種の蛍光体が開発されている。例えば、真空紫外線の照射によって励起され緑色を発光する蛍光体として、 $\text{BaAl}_{12}\text{O}_{19}:\text{Mn}$ で表されるアルミン酸塩、および $\text{Zn}_2\text{SiO}_4:\text{Mn}$ で表されるケイ酸塩が知られ、これらの蛍光体は広く使用されている。

15 真空紫外線励起発光素子は、例えば、表面基板;背面基板;表面基板と背面基板の間にあり、かつそれぞれに結合した隔壁;表面(背面)基板と隔壁に囲まれた空間に放電を起させる電極;隔壁、表面基板または背面基板の内側表面に形成される蛍光体層を含むものであり、空間には希ガスが封入されている。この真空紫外線励起発光素子では、希ガスを封入した空間に放電によりプラズマを生じさせて真空紫外線を発生させ、蛍光体層をその真空紫外線の照射により励起して可視光(例えば、  
20 緑色)を発光させる。

このような真空紫外線励起発光素子では、蛍光体はプラズマに曝露されることから、プラズマに曝露されたとき、輝度低下が少ない蛍光体が求められている。

発明の開示

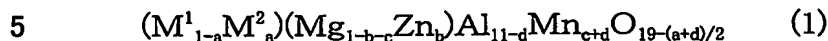
25 本発明の目的は、十分な輝度をもち、かつプラズマに曝露されたとき、輝度低下が少ない蛍光体を提供することにある。また、本発明の他の目的は、その蛍光体を用いる蛍光体ペースト、真空紫外線励起発光素子を提供することにある。

本発明者らは、上記の課題を解決すべく鋭意研究を重ねた結果、本発明を完成させるに至った。

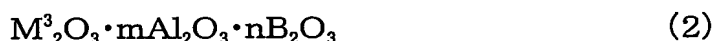
すなわち本発明は、次の蛍光物質 I および II を含む蛍光体を提供する。

蛍光物質 I は、ケイ酸塩と、付活剤として Mn を含み、

蛍光物質 II は、式(1)で表される化合物、または、式(2)で表される化合物と、付活剤として Tb を含む。



[式(1)中、 $M^1$ はLa、YおよびGdからなる群より選ばれる少なくとも1であり、  
 $M^2$ はCa、SrおよびBaからなる群より選ばれる少なくとも1であり、  
 $a$ は0以上、0.6以下であり、  
 $b$ は0以上、1以下であり、  
 $c$ は0以上、0.5以下であり、  
 $d$ は0以上、0.5以下であり、  
 $b+c$ は1以下であり、  
 $c+d$ は0を超え、0.5以下である。]



15 [式(2)中、 $M^3$ はLa、YおよびGdからなる群より選ばれる少なくとも1であり、  
 $m$ は2.5以上、4.5以下であり、  
 $n$ は3.5以上、5.5以下である。]

また本発明は、上記の蛍光体、溶媒およびバインダーを含む蛍光体ペーストを提供する。

20 さらに本発明は、上記の蛍光体および電極を含む真空紫外線励起発光素子を提供する。

### 発明を実施するための形態

本発明の蛍光体は、上記の蛍光物質 I を含む。

25 蛍光物質 I は、ケイ酸塩、及び付活剤として Mn を含むものであり、好ましくは、式(3)で表される化合物である。



[式(3)中、 $e$ は0を超え、好ましくは0.001以上であり、0.3以下、好ましくは0.2以下である。]

本発明の蛍光体は、さらに、上記の蛍光物質 II を含む。

蛍光物質 II の1つは、上記式(1)で表される化合物であり、上記式(1)において  $c + d$  が0.001以上、0.2以下であるものが好ましい。また、蛍光物質 II は、上記式(1)において  $d$  が0であるもの、すなわち、式(4)で表される化合物が好ましく、



[式(4)中、 $M^1$ はLa、YおよびGdからなる群より選ばれる少なくとも1であり、 $M^2$ はCa、SrおよびBaからなる群より選ばれる少なくとも1であり、 $a$ は0以上、0.6以下であり、 $b$ は0以上、1以下であり、 $c$ は0以上、0.5以下であり、 $b + c$ は1以下である。]

さらに好ましくは、式(4)において  $M^1$  がLaであり、 $M^2$  がBaであり、 $a$ が0.4であるもの、すなわち、式(5)で表される化合物である。



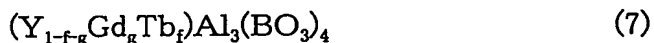
[式(5)中、 $b$ は0以上、1以下であり、 $c$ は0以上、0.5以下であり、 $b + c$ は1以下である。]

蛍光物質 II のもう1つは、式(2)で表される化合物と、付活剤としてTbを含むものであり、上記式(2)において  $m$  が3であり、 $n$  が4であるもの、すなわち、式(6)で表される化合物が好ましく、



[式(6)中、 $M^3$ はLa、YおよびGdからなる群より選ばれる少なくとも1であり、 $f$ は0を超え、0.6以下である。]

さらに好ましくは、式(6)において  $M^3$  がYおよびGdであるもの、すなわち、式(7)で表される化合物である。



[式(7)中、 $f$ は0を超え、好ましくは0.001以上であり、0.6以下、好ましくは0.3以下であり、

gは0以上、好ましくは0.1以上であり、1以下、好ましくは0.5以下である。]

- 5 本発明において、蛍光物質Ⅰと蛍光物質Ⅱの比は、蛍光物質Ⅰと蛍光物質Ⅱの合計を100%とした重量比として、前者が5重量%以上、好ましくは20重量%以上、さらに好ましくは40重量%以上であり、後者が95重量%以下、好ましくは80重量%以下、さらに好ましくは60重量%以下である。

本発明の蛍光体は、蛍光物質Ⅰと蛍光物質Ⅱを含み、それ以外のものを含まないものが好ましいが、本発明の効果を損なわない範囲内で、上記以外の化合物を含んでもよい。

- 10 本発明の蛍光体は、真空紫外線、真空紫外線以外の紫外線(近紫外線など)、X線および電子線等により励起され、緑色を発光するものであり、PDP、希ガスランプ、蛍光灯、夜光表示灯、X線検査装置、CRT等に用いられる。特に、本発明の蛍光体は、プラズマに曝露後、真空紫外線を照射したときの輝度が高く、PDPおよび希ガスランプのような真空紫外線励起発光素子用に好適である。
- 15 さらに、本発明の蛍光体は、色純度の高い緑色を発光する。色純度は色座標値(x、y)で表され、本発明の蛍光体は、xが通常0.01以上、好ましくは、0.184以上、さらに好ましくは0.19以上、通常0.35以下、好ましくは0.32以下、さらに好ましくは0.30以下であり、yが通常0.60以上、好ましくは0.61以上、さらに好ましくは0.65以上、通常0.82以下、好ましくは0.735以下、さらに好ましくは0.72以下のものである。
- 20

本発明の蛍光体は、例えば、蛍光物質Ⅰと蛍光物質Ⅱを混合する方法により製造すればよい。混合は、攪拌機、ボールミル、V型混合機、三本ロール等を用いて行えばよい。

- 25 蛍光物質Ⅰは、例えば、ケイ素化合物、マンガン化合物および亜鉛化合物のような金属化合物の混合物であって、焼成により蛍光物質Ⅰとなる混合物を焼成することにより調製すればよい。金属化合物は、高純度(99%以上)の水酸化物、炭酸塩、硝酸塩、ハロゲン化物、シュウ酸塩のような、後述する焼成温度のような高温で分解して酸化物になるもの、または高純度(99%以上)の酸化物等であり、これらの例は、高純

度の二酸化ケイ素、炭酸マンガ、酸化亜鉛等である。これらの金属化合物の混合は、例えば、ボールミル、V型混合機、攪拌機等を用いて行えばよい。原料として水酸化物、炭酸塩、硝酸塩、ハロゲン化物、シュウ酸塩のような、高温で分解して酸化物になる化合物を用いるとき、焼成前に、これらの化合物を仮焼してもよい。仮焼は、  
5 これら化合物から水(付着水)を除去したり、これら化合物から結晶水を除去して酸化物にする条件で行えばよく、例えば、温度:600℃以上、900℃未満の条件下で行えばよい。仮焼は、酸化性雰囲気(大気雰囲気等)、還元性雰囲気のいずれで行ってもよい。

焼成は、酸素雰囲気;酸素、窒素およびアルゴンを含む酸化性雰囲気(例えば、大  
10 気雰囲気)、好ましくは大気雰囲気で行えばよい。焼成は、通常、温度:1000℃以上、1500℃以下、時間:1時間以上、100時間以内の条件下で行えばよい。また、焼成においては、焼成前の混合物にフラックスを添加し、これを焼成してもよい。

焼成して得られる蛍光物質Iには、粉碎、洗浄、分級のような処理を施してもよい。粉碎は、例えば、ボールミル、ジェットミル等を用いて行えばよい。さらに、蛍光物質I  
15 または処理された蛍光物質Iは、再度焼成してもよく、再度焼成することにより、結晶性の高い蛍光物質Iが得られる。

蛍光物質IIは、例えば、ランタン化合物、イットリウム化合物、ガドリニウム化合物、カルシウム化合物、ストロンチウム化合物、バリウム化合物、マグネシウム化合物、亜  
20 鉛化合物、アルミニウム化合物、マンガ化合物、テルビウム化合物、ホウ素化合物のような化合物の混合物であって、焼成により蛍光物質IIとなる混合物を焼成することにより調製すればよい。化合物は、高純度(99%以上)の水酸化物、炭酸塩、硝酸塩、ハロゲン化物、シュウ酸塩のような、後述する焼成温度のような高温で分解して酸化物になるもの、または高純度(99%以上)の酸化物等であり、これらの例は、酸化ラ  
25 ンタン、酸化イットリウム、酸化ガドリニウム、炭酸バリウム、塩基性炭酸マグネシウム、酸化亜鉛、水酸化アルミニウム、炭酸マンガ、酸化テルビウム、ホウ酸等である。これらの化合物の混合は、蛍光物質Iと同じように、例えば、ボールミル、V型混合機、攪拌機等を用いて行えばよい。原料として水酸化物、炭酸塩、硝酸塩、ハロゲン化物、シュウ酸塩のような、高温で分解し酸化物になる化合物を用いるとき、焼成前に、これ

らの化合物を仮焼してもよい。仮焼は、これら化合物から水(付着水)を除去したり、これら化合物から結晶水を除去して酸化物にする条件で行えばよく、例えば、温度:60℃以上、900℃未満の条件下で行えばよい。また、仮焼は、大気雰囲気、還元性雰囲気、いずれで行ってもよい。

- 5 焼成は、0.1~10体積%の水素を含む不活性ガス(アルゴン、窒素等)のような還元性ガス雰囲気下で行うことが好ましい。焼成温度は、通常、1000℃以上、1500℃以下であり、1時間以上、100時間以内である。また、焼成においては、焼成前の混合物にフラックスを添加し、得られる混合物を焼成してもよい。

焼成して得られる蛍光物質IIには、粉碎、洗浄、分級のような処理を施してもよい。

- 10 粉碎は、例えば、ボールミル、ジェットミル等を用いて行えばよい。さらに、蛍光物質IIまたは処理された蛍光物質IIは再度焼成してもよく、再度焼成することにより、結晶性の高い蛍光物質IIが得られる。

本発明の蛍光体ペーストは、上記の蛍光体、溶媒およびバインダーを含む。

- 15 溶媒は、蛍光体、バインダーと混合したとき、この混合物をペースト状にするものであればよく、例えば、1価アルコールのうち高沸点のもの(高級アルコール等);エチレングリコールやグリセリンに代表される、ジオールやトリオールのような多価アルコール;アルコールをエーテル化および/またはエステル化した化合物(エチレングリコールモノアルキルエーテル、エチレングリコールジアルキルエーテル、エチレングリコールアルアルキルエーテルアセテート、ジエチレングリコールモノアルキルエーテルアセテート、ジエチレングリコールジアルキルエーテル、プロピレングリコールモノアルキルエーテル、プロピレングリコールジアルキルエーテル、プロピレングリコールアルアルキルアセテート)等である。溶媒の量は、蛍光体100重量部に対して、通常、50重量部以上、500重量部以下である。
- 20
- 25 バインダーは、得られる蛍光体ペーストを基材等に塗布して蛍光体層を形成したとき、蛍光体を基材等に固定できるものであればよく、例えば、セルロース樹脂(エチルセルロース、メチルセルロース、ニトロセルロース、アセチルセルロース、セルロースプロピオネート、ヒドロキシプロピルセルロース、ブチルセルロース、ベンジルセルロース、変性セルロース等);アクリル樹脂(アクリル酸、メタクリル酸、メチルアクリレート、メチ

ルメタクリレート、エチルアクリレート、エチルメタクリレート、プロピルアクリレート、プロピルメタクリレート、イソプロピルアクリレート、イソプロピルメタクリレート、*n*-ブチルアクリレート、*n*-ブチルメタクリレート、*tert*-ブチルアクリレート、*tert*-ブチルメタクリレート、2-ヒドロキシエチルアクリレート、2-ヒドロキシエチルメタクリレート、2-ヒドロキシプロピルアクリレート、2-ヒドロキシプロピルメタクリレート、ベンジルアクリレート、ベンジルメタクリレート、フェノキシアクリレート、フェノキシメタクリレート、イソボルニルアクリレート、イソボルニルメタクリレート、グリシジルメタクリレート、スチレン、 $\alpha$ -メチルスチレンアクリルアミド、メタアクリルアミド、アクリロニトリル、メタアクリロニトリルのような単量体の少なくとも1つの重合体);エチレン-酢酸ビニル共重合体;ポリビニルブチラール、ポリビニルアルコール、プロピレングリコール、ウレタン樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂等である。バインダーの量は、蛍光体100重量部に対して、通常、10重量部以上、50重量部以下である。

本発明の蛍光体ペーストは、基板、隔壁等に蛍光体層を容易に形成することができるものであり、また、得られる蛍光体層は、高輝度であり、かつプラズマ曝露や熱処理されたときでも、輝度低下が少ない。従って、本発明の蛍光体ペーストは、PDPおよび希ガスランプのような真空紫外線励起発光素子の蛍光体層の形成に有用である。PDPの製造では、例えば、蛍光体ペーストを発光部に塗布し、これを熱処理してバインダーを除去することにより、蛍光体層が形成される。本発明の蛍光体ペーストは、例えば、上記の蛍光物質 I、蛍光物質 II、溶媒およびバインダーを、ボールミルや三本ロール等を用いて混合することにより製造すればよい。混合は、例えば、温度:10°C以上、80°C以下、時間:10分以上、5時間以内の条件下で行えばよい。

本発明の真空紫外線励起発光表示素子は、上記の蛍光体を含むものであり、通常、上記の蛍光体以外に電極を含む。真空紫外線励起発光表示素子としては、PDP、希ガスランプなどが挙げられる。PDPは、背面基板、蛍光体層、透明電極、バス電極、誘電体層及び表面基板を含む。このようなPDPは、例えば、特開平10-195428号公報に開示されている方法で製造すればよい。PDPの製造方法として、例えば、(a)~(c)の工程を含む方法が挙げられる。

(a)背面基板の内面の、隔壁で仕切られ、アドレス電極を備えたストライプ状の基板表面と隔壁面に、青色発光用蛍光体ペースト、赤色発光用蛍光体ペーストおよび本発明の緑色発光用蛍光体ペーストを、それぞれ(スクリーン印刷などによって)塗布し、約300℃～約600℃の温度範囲で焼成し、蛍光体層を形成する工程、

5 (b)得られた蛍光体層に、直交する方向の透明電極およびバス電極を備え、内面に誘電体層と保護層を設けた表面ガラス基板を重ねて接着する工程、

(c)背面基板と表面ガラス基板に囲まれた内部を排気して減圧の希ガス(Xe、Neなど)を封入し、放電空間を形成する工程。

また、希ガスランプも、原料として上記の蛍光体ペーストを用いる以外、公知の方法  
10 と同様な操作により製造すればよい。

### 実施例

本発明を実施例によりさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

15

処理前の蛍光体の輝度:

蛍光体を真空槽内に入れ、6.7Pa( $5 \times 10^{-2}$ torr)以下に保持し、エキシマ146nmランプ(ウシオ電機株式会社製、H0012型)を用いて真空紫外線を蛍光体に照射して、蛍光体の輝度を求めた。

20

処理後の蛍光体の輝度および色座標値:

蛍光体を、雰囲気:空気、温度:500℃、保持時間:30分間の条件で熱処理し、次いで、雰囲気:5体積%Xe-95体積%Ne、圧力13.2Pa、温度:500℃、保持時間:30分間の条件で熱処理した蛍光体を真空槽内に入れ、50Wのプラズマに15分  
25 間曝露させた後、蛍光体の輝度を求めた。色座標値(x, y)は、色彩輝度計(株式会社トプコン製BM-7型)を用いて測定した。

製造例1(蛍光物質Iの製造)



酸化亜鉛(協和化学工業株式会社製:純度99.9%)、炭酸マンガ(和光純薬工業株式会社製:純度99.9%)、二酸化珪素(日本アエロジル株式会社製:純度99.99%)を、 $\text{Zn}:\text{Mn}:\text{Si}=1.9:0.1:1.0$ (モル比)に秤量し、これらと溶媒(イソプロピルアルコール)を湿式ボールミルにより4時間混合してスラリーを得た。スラリー中の溶媒をエバポレーターで除去し、得られた乾燥粉末をアルミナルツボに入れ、次いで空気雰囲気下、 $1200^{\circ}\text{C}$ で2時間焼成し、その後室温まで徐冷して、 $\text{Zn}_{1.9}\text{Mn}_{0.1}\text{SiO}_4$ で表される蛍光物質Iを得た。蛍光物質Iの輝度を測定した。蛍光物質Iは、波長146nmの真空紫外線を照射したとき、緑色を発光した。このときの輝度を100とした。蛍光物質Iについて、処理後の輝度および色座標値を測定した。結果を表1に示す。

10

#### 製造例2(蛍光物質IIaの製造)

酸化ランタン(信越化学工業株式会社製:純度99.99%)、炭酸バリウム(和光純薬工業株式会社製:純度99.9%)、塩基性炭酸マグネシウム(協和化学工業株式会社製:純度99%以上)、酸化亜鉛(協和化学工業株式会社製:純度99.9%)、水酸化アルミニウム(住友化学工業株式会社製:純度99%以上)、炭酸マンガ(和光純薬工業株式会社製:純度99.9%)を、 $\text{La}:\text{Ba}:\text{Mg}:\text{Zn}:\text{Al}:\text{Mn}=0.6:0.4:0.65:0.3:11.0:0.05$ (モル比)に秤量し、これらとイソプロピルアルコールを湿式ボールミルにより4時間混合してスラリーを得た。スラリー中の溶媒をエバポレーターで除去し、得られた乾燥粉末をアルミナルツボに入れ、次いで空気雰囲気下、 $1550^{\circ}\text{C}$ で24時間焼成し、その後室温まで徐冷した。この焼成粉末をアルミナボートに入れ、還元雰囲気(水素:2体積%、窒素:バランスの混合ガス)下、 $1400^{\circ}\text{C}$ で2時間再焼成し、その後室温まで徐冷して、 $\text{La}_{0.6}\text{Ba}_{0.4}(\text{Mg}_{0.65}\text{Zn}_{0.3}\text{Mn}_{0.05})\text{Al}_{11}\text{O}_{18.8}$ で表される蛍光物質IIaを得た。蛍光物質IIaは、波長146nmの真空紫外線を照射したとき、緑色を発光した。処理前・後の輝度、色座標値を表1に示す。

25

#### 製造例3(蛍光物質IIbの製造)

酸化イットリウム(信越化学工業株式会社製:純度99.99%)、酸化ガドリニウム(信越化学工業株式会社製:純度99.99%)、酸化テルビウム(信越化学工業株式会社製:純度99.99%)、水酸化アルミニウム(住友化学工業株式会社製:純度99%以

- 上)、ホウ酸(和光純薬工業株式会社製:純度99%以上)を、Y:Gd:Tb:Al:B=0.385:0.315:0.3:3.0:4.0(モル比)に秤量し、これらを乾式ボールミルにより4時間混合して粉末を得た。粉末をアルミナルツボに入れ、次いで空気雰囲気下、1150°Cで20時間焼成し、その後室温まで徐冷して、 $Y_{0.385}Gd_{0.315}Tb_{0.3}Al_3(BO_3)_4$ で表される蛍光物質 IIb を得た。蛍光物質 IIb は、波長146nmの真空紫外線を照射したとき、緑色を発光した。処理前・後の輝度、色座標値を表1に示す。

#### 実施例1～7

- 10 蛍光物質 I と、蛍光物質 IIa を5/95、20/80、40/60、50/50、60/40、80/20、95/5(重量比)に秤量し、これらとエタノールを湿式混合し、次いで、乾燥して蛍光体を得た。得られた蛍光体について、処理前・後の輝度および色座標値を表1に示す。

表1

	重量比(重量%)		相対輝度		色座標値(x,y)
	蛍光物質 I	蛍光物質 IIa	処理前	処理後	
製造例1	100	0	100	56	(0.256, 0.706)
実施例1	95	5	98	61	(0.250, 0.707)
実施例2	80	20	94	66	(0.240, 0.712)
実施例3	60	40	87	69	(0.231, 0.718)
実施例4	50	50	84	72	(0.224, 0.721)
実施例5	40	60	82	68	(0.218, 0.725)
実施例6	20	80	75	65	(0.205, 0.730)
実施例7	5	95	71	65	(0.184, 0.735)
製造例2	0	100	68	64	(0.180, 0.739)

- 15 表1の結果より、実施例1～7で得られた蛍光体は、処理後の輝度が十分に高く、かつ色純度が高い緑色を発光した。

#### 実施例8～14

- 20 蛍光物質 I と、蛍光物質 IIb を5/95、20/80、40/60、50/50、60/40、80/20、95/5(重量比)に秤量し、これらとエタノールを湿式混合し、次いで、乾燥し

て蛍光体を得た。得られた蛍光体について、処理前・後の輝度および色座標値を表1に示す。

表2

	重量比(重量%)		相対輝度		色座標値(x,y)
	蛍光物質 I	蛍光物質 IIb	処理前	処理後	
製造例1	100	0	100	56	(0.256, 0.706)
実施例8	95	5	101	60	(0.258, 0.700)
実施例9	80	20	101	71	(0.271, 0.682)
実施例10	60	40	103	80	(0.286, 0.647)
実施例11	50	50	105	88	(0.298, 0.634)
実施例12	40	60	106	91	(0.311, 0.621)
実施例13	20	80	105	98	(0.321, 0.608)
実施例14	5	95	106	105	(0.328, 0.600)
製造例3	0	100	108	107	(0.335, 0.583)

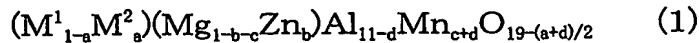
- 5 表2の結果より、実施例8～14で得られた蛍光体は、処理後の輝度が十分に高く、かつ色純度が高い緑色を発光した。

## 請 求 の 範 囲

1. 次の蛍光物質 I および II を含む蛍光体。

蛍光物質 I は、ケイ酸塩と、付活剤として Mn を含み、

- 5 蛍光物質 II は、式(1)で表される化合物、または、式(2)で表される化合物と、付活剤として Tb を含む。



[式(1)中、 $M^1$  は La、Y および Gd からなる群より選ばれる少なくとも 1 であり、

$M^2$  は Ca、Sr および Ba からなる群より選ばれる少なくとも 1 であり、

10  $a$  は 0 以上、0.6 以下であり、

$b$  は 0 以上、1 以下であり、

$c$  は 0 以上、0.5 以下であり、

$d$  は 0 以上、0.5 以下であり、

$b+c$  は 1 以下であり、

15  $c+d$  は 0 を超え、0.5 以下である。]



[式(2)中、 $M^3$  は La、Y および Gd からなる群より選ばれる少なくとも 1 であり、

$m$  は 2.5 以上、4.5 以下であり、

$n$  は 3.5 以上、5.5 以下である。]

- 20 2. 蛍光物質 I と蛍光物質 II の重量比は、5/95～95/5 である請求項 1 記載の蛍光体。

3. 蛍光物質 I は、式(3)で表される請求項 1 または 2 記載の蛍光体。



[式(3)中、 $e$  は 0 を超え、0.3 以下である。]

- 25 4. 蛍光物質 II は、式(4)で表される請求項 1～3 のいずれか記載の蛍光体。



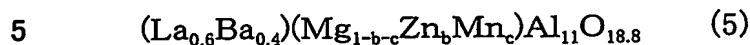
[式(4)中、 $M^1$  は La、Y および Gd からなる群より選ばれる少なくとも 1 であり、

$M^2$  は Ca、Sr および Ba からなる群より選ばれる少なくとも 1 であり、

$a$  は 0 以上、0.6 以下であり、

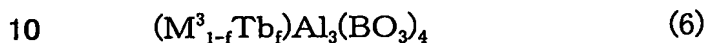
bは0以上、1以下であり、  
 cは0以上、0.5以下であり、  
 b+cは1以下である。]

5. 蛍光物質 II は、式(5)で表される請求項4記載の蛍光体。



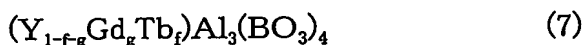
[式(5)中、bは0以上、1以下であり、  
 cは0以上、0.5以下であり、  
 b+cは1以下である。]

6. 蛍光物質 II は、式(6)で表される請求項1～3のいずれかに記載の蛍光体。



[式(6)中、 $\text{M}^{3+}$ はLa、YおよびGdからなる群より選ばれる少なくとも1であり、  
 fは0を超え、0.6以下である。]

7. 蛍光物質 II は、式(7)で表される請求項6記載の蛍光体。



15 [式(7)中、fは0を超え、0.6以下であり、  
 gは0以上、1以下である。]

8. 請求項1～7のいずれかに記載の蛍光体、溶媒およびバインダーを含む蛍光体ペースト。

9. 請求項1～7のいずれかに記載の蛍光体および電極を含む真空紫外線励起発光素子。

20

10. 請求項1～7のいずれかに記載の蛍光体の真空紫外線励起発光素子としての使用。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/019149

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09K11/08, 11/54, 11/55, H01J61/44, 11/02, 17/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09K11/08, 11/54, 11/55, H01J61/44, 11/02, 17/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1940-1992 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-1996  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-1992 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2003-303553 A (Fujitsu Hitachi Plasma Display Ltd.), 24 October, 2003 (24.10.03), (Family: none)	1-4, 6-10 5
Y A	JP 2003-336047 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 28 November, 2003 (28.11.03), (Family: none)	1-4, 6-10 5
Y A	JP 2003-342566 A (Fujitsu Ltd.), 03 December, 2003 (03.12.03), & US 2003/173542 A1 & EP 1359205 A1	1-4, 8-10 5-7
Y A	JP 2003-96448 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 03 April, 2003 (03.04.03), (Family: none)	1-3, 6-10 4, 5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
14 February, 2005 (14.02.05)

Date of mailing of the international search report  
01 March, 2005 (01.03.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2004/019149

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
E, X E, A	JP 2005-5249 A (Samsung SDI Kabushiki Kaisha), 06 January, 2005 (06.01.05), Claims (Family: none)	1-4, 8-10 5-7

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/019149

In claims 1 to 6, 8 to 10 of the present application, it is unclear whether a fluorescent substance containing "Tb" as an activating agent is (2) alone of the fluorescent substance (II) or both of (1) and (2).

In claims 1, 2, 4 to 10, the structural formula of the fluorescent substance (I) is indicated with a part of the elements constituting the substance, and therefore, the whole structure thereof cannot be grasped and the substance is unclear as a chemical substance.

Although claims 1 to 10 of the present application describe phosphors wherein each of a plurality of elements constituting them can be various elements, only a substance consisting of Zn, Mn and  $\text{SiO}_4$  with respect to the fluorescent substance (I), only a substance consisting of La, Ba, Mg, Zn, Mn, Al and oxygen with respect to the fluorescent substance (IIa), and only a substance consisting of Y, Gd, Tb, Al and  $\text{BO}_3$  with respect to the fluorescent substance (IIb) are disclosed specifically in the specification.

As a result, only a slight part of the phosphors described in the claims are supported by the specification in the meaning of PCT Article 6 and disclosed in the meaning of PCT Article 5.

As described above, the description in claims and specification of the present application has a plurality of deficiencies. Accordingly, the search has been carried out based on the examples and the like.



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09K11/08, 11/54, 11/55, H01J61/44, 11/02, 17/04

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C09K11/08, 11/54, 11/55, H01J61/44, 11/02, 17/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1940-1992年  
 日本国公開実用新案公報 1971-1992年  
 日本国登録実用新案公報 1994-1996年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	JP 2003-303553 A (富士通日立プラズマディスプレイ株式会社) 2003.10.24 (ファミリーなし)	1-4, 6-10 5
Y A	JP 2003-336047 A (松下電器産業株式会社) 2003.11.28 (ファミリーなし)	1-4, 6-10 5
Y A	JP 2003-342566 A (富士通株式会社) 2003.12.03 & US 2003/173542 A1 & EP 1359205 A1	1-4, 8-10 5-7

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に関する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

14.02.2005

国際調査報告の発送日

01.3.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

田村 聖子

4V

9051

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		関連する 請求の範囲の番号
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	
Y A	JP 2003-96448 A (住友化学工業株式会社) 2003.04.03 (ファミリーなし)	1-3, 6-10 4, 5
EX EA	JP 2005-5249 A (三星エスディアイ株式会社) 2005.01.06、請求項 (ファミリーなし)	1-4, 8-10 5-7

本願の請求の範囲1～6、8～10では、「Tb」を賦活剤として含む蛍光物質が、蛍光物質IIの(2)のみであるのか、(1)及び(2)の双方であるのかが不明である。

請求の範囲1、2、4～10では、蛍光物質Iの構造式が、構成する一部の元素のみで示されているため、全体構造を把握することができず、化学物質として不明確である。

本願の請求の範囲1～10では、構成する複数の元素がそれぞれ様々な元素を採りうる蛍光体が記載されているが、明細書において具体的に開示されているものは、蛍光物質IについてはZnとMnとSiO<sub>4</sub>とからなるもののみ、蛍光物質IIaについてはLa、Ba、Mg、Zn、Mn、Alと酸素からなるもののみ、蛍光物質IIbについてはY、Gd、Tb、Al、BO<sub>3</sub>からなるもののみにすぎない。

してみると、PCT6条の意味において明細書に裏付けられ、また、PCT5条の意味において開示されているのは、請求の範囲に記載された蛍光物質のごくわずかな部分にすぎないものと認められる。

以上のとおり、本願の請求の範囲及び明細書の記載には複数の不備があるので、本調査は実施例相当に基づいて行った。